

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-133312

(43)Date of publication of application : 12.05.2000

(51)Int.Cl.

H01M 10/40

H01M 4/02

H01M 4/04

H01M 6/18

(21)Application number : 11-291933

(71)Applicant : ALCATEL

(22)Date of filing : 14.10.1999

(72)Inventor : PASQUIER ERIC

(30)Priority

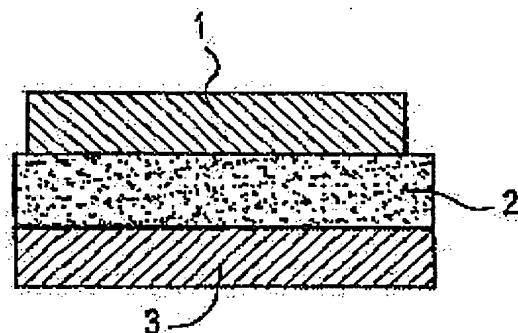
Priority number : 98 179414 Priority date : 27.10.1998 Priority country : US

## (54) ROOM TEMPERATURE LAMINATION OF LI-ION POLYMER ELECTRODE

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To establish a method to reduce the complication associated with the process of manufacturing electrolytic cells.

SOLUTION: A solution is formed by mixing polyvinylidene difluoride homo- polymers with a solvent such as acetone, and with the solution, the oversurface of a porous electrode is covered. The covered electrode is immersed in a chamber containing denatured ethanol, etc., so that a porous film is formed on the electrode. Then the film-covered electrode is dried and positioned confronting other porous electrode, and the film 2 is placed between the first and second electrodes approximately, compressed between the electrodes, and put in dry coupling with the other electrode to generate a coupling of good physical performance. Otherwise, films 2 may be formed on both electrodes, followed by film compression between the two electrodes and a dry coupling of the first and second electrodes with each other. As one alternative embodiment, the film 2 is formed separately, compressed between the electrodes, and put in dry coupling with two electrodes.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-133312

(P2000-133312A)

(43) 公開日 平成12年5月12日 (2000.5.12)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テーマコード (参考)
H 0 1 M 10/40		H 0 1 M 10/40	B
4/02		4/02	B
4/04		4/04	Z
6/18		6/18	Z

審査請求 未請求 請求項の数34 O L 外国語出願 (全 28 頁)

(21) 出願番号 特願平11-291933

(22) 出願日 平成11年10月14日 (1999.10.14)

(31) 優先権主張番号 1 7 9 4 1 4

(32) 優先日 平成10年10月27日 (1998.10.27)

(33) 優先権主張国 米国 (U S)

(71) 出願人 391030332

アルカテル

フランス国、75008 バリ、リュ・ラ・ボ

エティ 54

(72) 発明者 エリック・パスキエ

アメリカ合衆国、ノース・カロライナ・

28601、ヒツコリー、トゥエンティース・

アベニュー・ドライブ・ノース・イース

ト・1750、アパートメント・60

(74) 代理人 100062007

弁理士 川口 義雄 (外2名)

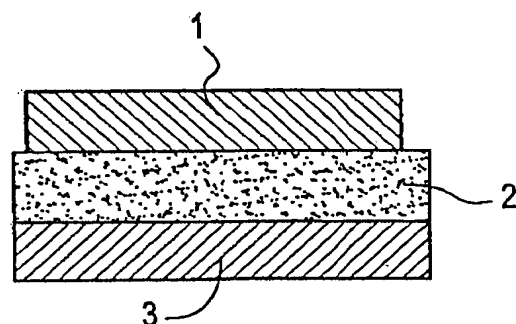
(54) 【発明の名称】 Liイオンポリマー電極の室温積層

(57) 【要約】

【課題】 電解セルを製造する方法に関連する複雑さを低減する方法を提供すること。

【解決手段】 ポリニフッ化ビニリデンホモポリマーとアセトンなどの溶媒を混合して溶液を形成する。その溶液を多孔質電極上に被覆する。その被覆電極を変性エタノールなどの槽中に浸漬して、電極上に多孔質膜を形成する。次に、膜被覆電極を乾燥する。乾燥後に、膜被覆電極を他の多孔質電極と対向して配置し、膜をほぼ第1の電極と第2の電極の間に配置する。膜を電極間で圧縮し、膜を他方の電極と乾式結合し、それによって良好な物理的な結合を形成する。もしくは、膜を両方の電極に形成してもよく、次に、膜を電極間で圧縮し、第1の電極と第2の電極を共に乾式結合する。さらに他の実施形態では、膜を別個に形成し、次に電極の間に圧縮し、それによって膜を2つの電極と乾式結合する。

FIG.1A



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 第 1 の電極と第 2 の電極との間に多孔質膜を配置するステップと、  
前記電極間の前記膜を圧縮して前記膜を前記電極に乾式結合するステップとを含む電解セルを製造する方法。

【請求項 2】 前記圧縮するステップが、前記膜と第 1 の電極とを前記第 2 の電極と共にカレンダーにかけるステップをさらに含む請求項 1 に記載の方法。

【請求項 3】 前記第 1 の電極がほぼ 25% から 40% までの多孔率を有し、前記第 2 の電極がほぼ 25% から 40% までの多孔率を有する請求項 1 に記載の方法。

【請求項 4】 前記圧縮するステップが前記膜を少なくとも 20% 圧縮するステップをさらに含む請求項 1 に記載の方法。

【請求項 5】 前記膜が最初に少なくとも 50% の多孔率を有する請求項 1 に記載の方法。

【請求項 6】 前記膜がポリニフッ化ビニリデンホモポリマーで形成される請求項 5 に記載の方法。

【請求項 7】 前記乾式結合が  $10\text{ N/cm}^2$  より大きな結合力を有する請求項 1 に記載の方法。

【請求項 8】 ポリニフッ化ビニリデンホモポリマーと溶媒を混合して溶液を形成するステップと、  
前記溶液を前記第 1 の電極上に被覆するステップと、  
前記溶液を前記第 2 の電極上に被覆するステップと、  
前記第 1 および第 2 の被覆電極を液体で満たされた槽中に浸漬して前記第 1 および第 2 の電極上に多孔質膜を形成するステップと、  
前記第 1 および第 2 の被覆電極を乾燥するステップと、  
前記第 1 の電極を前記第 2 の電極と対向して、それぞれの膜が実質的に前記第 1 の電極と前記第 2 の電極の間に配置された状態で配置するステップと、  
前記第 1 の電極と前記第 2 の電極の間の膜を圧縮して前記第 1 の電極と前記第 2 の電極を共に乾式結合するステップとをさらに含む請求項 1 に記載の方法。

【請求項 9】 前記圧縮するステップが、前記膜を少なくとも 25% 圧縮するステップをさらに含む請求項 8 に記載の方法。

【請求項 10】 前記第 1 の電極と前記第 2 の電極上に前記多孔質膜を形成する前記ステップが、少なくとも 60% の多孔率を有する前記膜を形成するステップをさらに含む請求項 8 に記載の方法。

【請求項 11】 前記第 1 の電極と前記第 2 の電極上に前記多孔質膜を形成する前記ステップが、前記第 1 の電極上に  $50\text{ }\mu\text{m}$  から  $120\text{ }\mu\text{m}$  までの厚さを有する前記膜を形成するステップ、および前記第 2 の電極上に  $25\text{ }\mu\text{m}$  から  $100\text{ }\mu\text{m}$  までの厚さを有する前記膜を形成するステップをさらに含む請求項 10 に記載の方法。

【請求項 12】 請求項 11 に記載の方法によって製造した電解セル。

【請求項 13】 多孔質膜で被覆された第 1 の電極を設

けるステップと、

前記膜および第 1 の電極を第 2 の電極と対向して、前記膜がほぼ前記第 1 の電極と第 2 の電極の間に配置された状態で配置するステップと、

前記電極の間の膜を圧縮して前記膜を前記第 2 の電極と乾式結合するステップとを含む電解セルを製造する方法。

【請求項 14】 ポリニフッ化ビニリデンホモポリマーと溶媒を混合して溶液を形成するステップと、  
前記溶液を前記第 1 の電極上に被覆するステップと、  
前記第 1 の電極を液体で満たされた槽中に浸漬して前記第 1 の電極上に前記多孔質膜を形成するステップと、  
前記膜および前記第 1 の電極を前記第 2 の電極と共に圧縮する前に前記膜と前記第 1 の電極を乾燥するステップとをさらに含む請求項 13 に記載の方法。

【請求項 15】 前記第 1 の電極が負電極であり、前記第 2 の電極が正電極である請求項 13 に記載の方法。

【請求項 16】 前記第 1 の電極が正電極であり、前記第 2 の電極が負電極である請求項 13 に記載の方法。

【請求項 17】 前記第 1 の電極が少なくとも 30% の多孔率を有し、前記第 2 の電極が少なくとも 25% の多孔率を有する請求項 13 に記載の方法。

【請求項 18】 前記圧縮するステップが、前記膜と前記第 1 の電極を前記第 2 の電極と共にカレンダーにかけるステップをさらに含む請求項 13 に記載の方法。

【請求項 19】 前記圧縮するステップが、前記膜を少なくとも 20% 圧縮するステップをさらに含む請求項 15 に記載の方法。

【請求項 20】 前記膜を形成するステップが、ほぼ少なくとも 50% の多孔率を最初に有する膜を形成するステップをさらに含む請求項 13 に記載の方法。

【請求項 21】 前記膜を形成するステップが、少なくとも  $50\text{ }\mu\text{m}$  の厚さを有する膜を形成するステップをさらに含む請求項 20 に記載の方法。

【請求項 22】 前記乾式結合が  $10\text{ N/cm}^2$  より大きな結合力を有する請求項 13 に記載の方法。

【請求項 23】 請求項 13 に記載の方法によって製造した電解セル。

【請求項 24】 第 1 の多孔質膜を第 1 の電極と第 2 の電極の間に配置するステップと、  
第 2 の多孔質膜を前記第 2 の電極と第 3 の電極の間に配置するステップと、

前記第 1 の電極と前記第 2 の電極の間の前記第 1 の膜、および前記第 2 の電極と前記第 3 の電極の間の前記第 2 の膜を圧縮して、前記第 1 の膜を前記第 1 の電極と前記第 2 の電極に、前記第 2 の膜を前記第 2 の電極と前記第 3 の電極にそれぞれ乾式結合するステップとを含む電解セルを製造する方法。

【請求項 25】 前記第 1 および前記第 3 の電極が正であり、前記第 2 の電極が負である請求項 24 に記載の方

法。

【請求項 26】 前記第 1 および前記第 3 の電極が負であり、前記第 2 の電極が正である請求項 24 に記載の方法。

【請求項 27】 前記乾式結合が  $10\text{ N/cm}^2$  より大きな結合力を有する請求項 24 に記載の方法。

【請求項 28】 請求項 24 に記載の方法によって製造した電解セル。

【請求項 29】 微孔性ポリニフッ化ビニリデンホモポリマー (PVdF) 膜を含むリチウム 2 次セルを製造する方法であって、  
リチウムをベースにした電極を設けるステップと、  
前記電極上に PVdF 膜を配置するステップと、  
前記電極と前記膜を圧縮するステップとを含み、前記電極と前記 PVdF 膜が少なくとも  $10\text{ N/cm}^2$  の結合力で乾式結合される方法。

【請求項 30】 前記圧縮するステップが、前記膜をその元の厚さの少なくとも 70 パーセントまで圧縮する請求項 29 に記載の方法。

【請求項 31】 請求項 29 に記載の方法によって製造したリチウムイオンセル。

【請求項 32】 微孔性ポリニフッ化ビニリデンホモポリマー (PVdF) 膜を含むリチウム 2 次セルを製造する方法であって、  
リチウムをベースにした電極を設けるステップと、  
前記電極を第 1 の PVdF 膜で被覆するステップと、  
第 1 の PVdF 膜に第 2 の PVdF 膜を配置するステップと、  
前記電極被覆 PVdF 膜および前記第 2 の PVdF 膜を圧縮するステップとを含み、前記電極被覆 PVdF 膜と前記第 2 の PVdF 膜が少なくとも  $10\text{ N/cm}^2$  の結合力で乾式結合される方法。

【請求項 33】 前記圧縮するステップが、前記第 1 および第 2 の膜をその元の厚さの少なくとも 70% まで圧縮する請求項 32 に記載の方法。

【請求項 34】 請求項 32 に記載の方法によって製造したリチウムイオンセル。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、一般にアノードとカソードの間に配置されたポリマーセパレータを含む電解セルに関し、特に、電解セル用リチウムイオンポリマー電極の室温積層に関する。

【0002】

【従来の技術】Liイオン電池用の電解セルなどの電解セルの製造には様々な方法が使用されている。Liイオン電池は、再充電可能な電池の用途に一般的に使用されており、携帯電話などの多くの携帯可能な電子装置に用いられている。自由な液体電解質を有する従来のリチウムイオンセルでは、電極/セパレータ/電極の構造は、

その構造を円筒体に巻くことによって保たれている。

【0003】他のリチウムイオンポリマーセルでは、電極/セパレータ/電極の構造は、それぞれ電極およびセパレータのポリマー構成要素と隔離板の間の化学結合が水素結合かいずれかによって従来の方法で実現されている。そのようなセルは、また、電極と電解質薄膜セル要素を積層して組み立てられる。セパレータまたは膜は正電極と負電極の間に配置される。アノード、膜、およびカソードが次に積層される。しかし、適当な結合がアノード、膜およびカソードの間に設けられなければならない。さもないと、使用中に電極がはやく壊れ、電池の寿命および性能を減少させる。

【0004】上述のように、様々な結合方法が電池セルおよび電極を形成するために使用される。そのような方法の 1 つによれば、電極の要素を結合するために膜と共に接着剤が使用される。しかし、この方法には、工業的な製造の場では制御するのが困難な監視しなければならない多くのパラメータがあり、そのような方法の実施を費用のかかるものにする。さらに、接着剤は膜を溶解して壊し、つぶれさせることがある。これによって、セルのインピーダンスが高くなり、電力性能が悪くなり、さらにセルの容量が小さくなる。

【0005】使用される他の方法は、例えば、米国特許第 5720780 号に開示されている。この方法によれば、ポリニフッ化ビニリデン (PVdF) ホモポリマーなどの適当なポリマーの結合剤がシリカまたはアルミニウムなどの充填剤と一緒に使用される。適当な可塑性剤が結合剤材料および充填剤材料に混合され、それによって生じた構造物が独立したシートにホットプレス成形される。この方法では、後で可塑性剤を取り除くという方法ステップに加えて、製造方法の多数の変動要素および条件を注意深く制御することを必要とする追加の加熱のステップが必要になる。

【0006】多孔質電極構造に固体電解質を積層した電池セルを製造する他の方法が、米国特許第 5700300 号に開示されている。その特許は 3 ステップの電解質付着の方法を開示している。比較的低粘度の過剰な電解質ブリュエット材料が、乾燥した多孔質電極の上に層状に積み重ねられる。過剰なブリュエット材料が電極の表面から機械的に取り除かれる。ブリュエット溶液が多孔質電極に吸収可能にされ、その表面が高粘度電解質前駆物質で被覆される。標準的な方法で硬化またはさらなる処理が行われる。電流コレクタ/カソード/電解質の積層物の電解質表面に電流コレクタ/アノード板を積層して電池が形成される。

【0007】米国特許第 5593462 号は、金属被覆された支持薄膜にカソードを押出し成形し、続いて電解質をアセンブリに押出し成形する方法を開示している。次に、リチウムアノードが支持薄膜の上に押出し成形され、次に、その 2 つの複合体がカレンダーにかけられ

る。

#### 【0008】

【発明が解決しようとする課題】これら2つの方法は加熱のステップまたは接着剤の使用を必要としないが、これらは湿った電解質を使用する。そのために、2つの方法とも、物理的な結合を形成する代わりに、積層構造を保つために水素結合などの弱い結合を有している。弱い結合が使用されるので、使用中に積層構造のひび割れまたは剥がれが起き、これらの方法で製造した電池の寿命および動作効率を減少させることがある。さらに、これら10の方法では部屋の湿度などの製造条件を注意深く監視し、制御しなければならず、この方法を使用する製造のコストを高くしている。

【0009】したがって本発明の目的は、電解セルを製造する方法に関連する複雑さを低減することである。

【0010】本発明の他の目的は、追加の接着剤を必要とせずに積層された層間に強い物理的な結合を与える積層構造を提供することである。

#### 【0011】

【課題を解決するための手段】本発明の例示的な実施形態によれば、上記その他の目的は、室温積層方法を実施することによって達成される。

【0012】本方法の第1の実施形態によれば、ポリニフッ化ビニリデンホモポリマーと溶媒を混合して溶液を形成する。その溶液を電極上に被覆する。電極を槽中に浸漬して電極上に多孔質膜を形成する。次に、膜被覆電極を乾燥する。乾燥後、膜被覆電極を他の電極と対向して配置して、それぞれの膜をほぼ前記第1の電極と第2の電極の間に配置する。膜を電極間で圧縮し、膜を他方の電極と乾式結合して良好な物理的結合を形成する。

【0013】本発明の他の実施形態によれば、ポリニフッ化ビニリデンホモポリマーを溶媒と混合して溶液を形成する。溶液を第1の電極と第2の電極上に被覆する。第1の電極と第2の被覆電極を槽中に浸漬して電極上に多孔質膜を形成する。電極を乾燥する。第1の電極を第2の電極と対向して配置して、それぞれの膜をほぼ電極間に配置する。次に、膜を第1の電極と第2の電極間で圧縮して、前記第1の電極と第2の電極を共に乾式結合する。

【0014】本発明のさらに他の実施形態によれば、ポリニフッ化ビニリデンホモポリマーと溶媒を共に混合して溶液を形成する。前記溶液を槽に浸すことによって膜を形成する。膜を乾燥し、次にほぼ2つの電極の間に配置する。次に、膜を電極間で圧縮して、膜を前記2つの電極と乾式結合する。

【0015】本発明の上記その他の特徴、目的および利点は、図面と共に下記の説明を読めばよりよく理解できよう。

#### 【0016】

【発明の実施の形態】本発明の様々な特徴について図を

参照しながら説明する。図では、同じ部分は同じ参照記号で示されている。

【0017】本発明の電気化学セルまたは電池は、負電極と正電極を有している。膜が2つの電極の間に形成される。イオン伝導電解質によって、一方の電極から他方の電極にイオンの移動が可能になる。例えば、リチウムイオン電池の一実施形態によれば、ソース電極からのリチウムイオンがセル電極間で移動し、それによって電池を充電または放電する。本発明の好ましい一実施形態によれば、負電極は約120 $\mu$ mの厚さであり、18 $\mu$ mの厚さの銅箔で支持されている。正電極は約90 $\mu$ mの厚さで、20 $\mu$ mの厚さのアルミニウム箔で支持されている。

【0018】本発明の実施形態によれば、ポリニフッ化ビニリデン(PVdF)ホモポリマーが多孔質膜を形成するために使用される。PVdFは室温で固体である。しかし、PVdFをアセトンなどの溶媒と混合することによって液体の溶液が形成される。また、テトラヒドロフラン、メチルエチルケトン、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、テトラメチル尿素、ジメチルスルホキシド、リン酸トリエチル、リン酸トリメチル、N-メチルピロリジンなどの他の溶媒が使用できることを当業者なら理解できよう。

【0019】本発明の実施形態によれば、多孔質膜は次のように形成することができる。気密封止された容器で、19重量%のPVdFホモポリマー、例えばKynar 301 F (Elf Atochem, King of Prussia, Pennsylvania から市販されている)がHPLC等級の81重量%のアセトン(Aldrich, Milwaukee, Wisconsinから市販されている)に溶解される。次に、溶液は60℃で撹拌される。最終製品の形態を制御するようにPVdFを溶解するために、様々な溶媒の混合物も使用できることを当業者なら理解できよう。

【0020】本発明の例示的な実施形態によれば、PVdF/アセトン溶液が、コンポジットグラフアイトの負電極上に被覆される。負電極はほぼ25%から40%までの多孔率(porosity)を有しなければならない。PVdF/アセトン溶液は多くの知られている方法のどれで塗布してもよい。一実施形態によれば、ナイフコートが電極を被覆するために使用される。もしくは、電極をほぼ一様な厚さに被覆するために、例えばドクターブレード、Meyer rod、またはスロットダイを使用して、PVdF/アセトン溶液を押出し成形してもよい。

【0021】PVdF/アセトン溶液で被覆された負電極は、次に、浸漬槽に入れられる。好ましい一実施形態によれば、変性エタノール(Ashland Chemicals, Charlotte, North Carolinaから市販されている)がその槽に含まれてい

る。この方法で 사용할 ことが できる 他 の 浸漬 液 に は、網羅 的 で は な い が、ヘキサン、ペンタン、ベンゼン、トルエン、メタノール、エタノール、四塩化炭素、 $\alpha$ -ジクロロベンゼン、トリクロロエチレン、および水がある。さらに、その槽の全体的な組成が非溶媒であれば、これらの液体と上記の溶媒の様々な混合物を使用してもよい。このようにして、膜を形成するのに必要な時間を調節するために槽の非溶媒の量を使用することができ、また、それによって膜の最終的な形態が制御される。この実施形態では、被覆電極が少なくとも30秒間エタノール槽中に浸漬される。この方法によれば、被覆電極を槽に入れると、エタノールがPVdF溶液のアセトンに取って代わる。アセトンを取り除くことによって、PVdFを液体状態に維持するものが何もなくなくなるので、PVdFの高多孔質構造を有する膜が溶液から析出される。その結果、電極がPVdFの多孔質膜で被覆されたままになる。

【0022】次に、負電極およびPVdF膜が槽から取り出され、乾燥可能にされる。乾燥は大気または加熱、またはその組合せを用いて行うことができる。好ましい一実施形態によれば、雰囲気温度を100℃に設定された対流オープンで電極を乾燥することができる。乾燥された膜の多孔率は、60%から80%まででなければならない。40 $\mu$ mから110 $\mu$ mの厚さである。好ましい一実施形態によれば、厚さは60 $\mu$ mから90 $\mu$ mの間でなければならない。

【0023】乾燥された負電極-膜の構造は、次に、長さ約83mmで幅約43mmの長方形に切断される。ほぼ25%から40%までの多孔率を有するLiCoO<sub>2</sub>、LiNiO<sub>2</sub>、LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub>、それらの合金、またはリチウム挿入化合物に基づいた複合正電極が、長さ81mmで幅41mmの長方形に切断される。特定の用途で決定される他の寸法が使用することができ、または電極と膜の両方を連続したウェブとして積層することができることを当業者なら理解できよう。

【0024】図1Aおよび図1Bについて、正電極板1は負電極3-膜2の構造の一番上に配置され、膜2は電極1と電極3の間に配置される。図1Bに示すように長方形構造の周辺部全周にわたって正電極1の縁部と負電極3の間に1mmの離間距離Aが設けられる。実際の製造方法の要件によって他の離間距離が使用できることを当業者なら理解できよう。

【0025】図2に示すように、次に、積み重ねられた正電極(1)-膜(2)-負電極(3)が、KRHNRolls, Inc.、Orange, Massachusettsで製造されたAccunipなどの実験用カレンダー10に設置される。この例示的な実施形態によれば、カレンダー10のギャップは膜がその元の厚さのほぼ15から75パーセントに、好ましい一実施形態によれば25から70パーセントに圧縮されるように調整

されなければならない。それによって、乾式結合が多孔質膜3と正電極1の間に形成されるようになる。この実施形態によれば、70パーセントの圧縮比で達成できる最高結合値を有する20から38N/cm<sup>2</sup>の結合力を持つ乾式結合が得られる。

【0026】乾式結合は電極と膜構造の物理的な結合である。膜の多孔率と電極の多孔率によって膜と電極の相互浸透が可能になり、その相互浸透が、カレンダーにかけることによって引き起こされる変形と組み合わせ、2つの構造を物理的に橋かけ連結する。この結果、12~40N/cm<sup>2</sup>の結合力が得られる。さらに、その結合はどのような化学的な反応または原子的結合も必要としない乾式なものである。このために、他の従来技術の積層方法に関連したひび割れおよび剥がれが起りにくい強い物理的な結合が形成される。さらに、結合が乾式なので、積層方法中に部屋条件を注意深く監視し制御する必要がなく、さらに可塑剤または揮発性化合物を取り除く必要もない。

【0027】本発明の他の実施形態によれば、負電極の代わりに、正電極が上記のように被覆されてもよい。そのとき、正電極-膜-電極の構造を上記のようにカレンダーにかけることができる。

【0028】本発明の別の実施形態によれば、負電極について上に述べた方法と同様にして、膜が正電極と負電極の両方に被覆される。この実施形態では、膜は25 $\mu$ mから75 $\mu$ mまでの厚さで60パーセントから80パーセントまでの多孔率を有する。次に、正電極-膜が長さ81mmで幅41mmの長方形に切断され、負電極-膜が長さ83mmで幅43mmの長方形に切断される。特定の用途で決定される他の寸法が使用できることを当業者なら理解できよう。

【0029】次に、互いに膜被覆を対向して、膜被覆正電極を膜被覆負電極上に配置する。次に、正電極-膜-膜-負電極の構造をカレンダーにかける。この実施形態によるカレンダーのギャップは、膜がその元の厚さの25~70パーセントに、好ましい一実施形態によれば35~50パーセントに圧縮されるように調節されなければならない。これによって、膜が物理的に結合して、12~33N/cm<sup>2</sup>の範囲の結合力を有する乾式結合を形成する。この実施形態では、約40パーセントの圧縮比で最高の値を達成することができる。

【0030】本発明のさらに他の実施形態によれば、独立した膜を前に述べた浸漬槽法を使用して別個に形成することができる。この方法によれば、例えば不織ウェブ、ポリプロピレンシート、またはマイラー薄膜に膜を形成することができる。膜の多孔率は60パーセントから80パーセントまででなければならない。25~40の多孔率を有する正電極が、長さ81mmで幅41mmの長方形に切断され、30~40パーセントの間の多孔率を有する負電極が長さ83mmで幅43mmの長方形

に切断される。また、膜が長さ 83mm で幅 43mm の長方形に切断される。膜が負電極の上に置かれ、正電極が膜の上に置かれる。次に、正電極—膜—負電極の構造が一緒にカレンダーにかけられる。この実施形態によるカレンダーのギャップは、膜がその元の厚さの 15～70 パーセントに、好ましい実施形態によれば 40～70 パーセントに圧縮されるように調節されなければならない。これによって、膜が正電極と負電極に物理的に結合するようになる。

【0031】本発明のさらに他の実施形態では、上記の方法によって、図 3A および図 3B に示される他のセル構造を実現することができる。例えば、正電極／膜／負電極／膜／正電極（図 3A）、または負電極／膜／正電極／膜／負電極（図 3B）の構造を実現することができる。この実施形態によれば、2つの負電極または2つの正電極を多孔質膜で被覆する。次に、正電極または負電極をそれぞれほぼ被覆負電極または被覆正電極の間に配置する。膜はその配置した正電極または負電極と対向している。次に、正電極／膜／負電極／膜／正電極、または負電極／膜／正電極／膜／負電極が、上記のように共にカレンダーにかけられる。

【0032】もしくは、正電極、膜、負電極、膜および正電極、または、負電極、膜、正電極、膜および負電極を対応する構造に個々に積み重ね、次に上記のように一緒にカレンダーにかけてもよい。同様に、この他の実施形態によれば、2つの負電極または2つの正電極が多孔質膜で被覆される。また、正電極または負電極が被覆され、次に、電極の膜が互に対向している状態で、それぞれ被覆負電極間または被覆正電極間にほぼ配置される。次に、その構造体が一緒にカレンダーにかけられる。また、膜を負電極の両側に被覆し、2つの正電極の間にほぼ配置することができる。次に、その構造がカレンダーにかけられる。さらに、膜を正電極の両側に被覆し、2つの負電極の間にほぼ配置することができる。次に、そのようにしてできた構造が一緒にカレンダーにかけられる。

【0033】電極膜構造をカレンダーにかけるものとして室温積層の方法について上記で説明したが、前に述べた実施形態による膜を圧縮する他の積層方法も使用できることを当業者なら理解できよう。例えば、その間に膜を有する2つの電極を静的プレス成形機に設置し、次に一緒に押し固めることができる。

【0034】本発明の様々な実施形態によれば、加熱、接着剤、または、従来技術で必要とされた注意深く調整された部屋条件を必要とせずに、室温で、乾式積層を得ることができる。これによって、より手っ取り早いより経済的なセル作成方法が得られる。さらに、膜と電極の間の物理的な接着が得られ、ひび割れまたは剥がれが起こりにくくなり、さらにどのようなセルの寿命も長くなる。さらに、セル容量を維持することができる。

【0035】最後に、上記の実施形態による良好な乾式結合を形成するために、加熱は必要でないが、本発明の様々な実施形態では、開示の方法と組み合わせて加熱を使用することが含まれる。例えば、膜と膜の接着の場合に、高温での高い圧縮比を使用することによって、結合力を  $26 \text{ N/cm}^2$  から  $33 \text{ N/cm}^2$  に増加することができる。さらに、本発明の様々な実施形態と共に高温での硬化を使用してもよく、より良好な結合力が得られる場合もある。

【0036】以上、本発明について例として説明したが、本発明の精神から逸脱することなく例示的な実施形態の変更および変形を当業者なら思い付くであろう。好ましい実施形態は単に例示的なものにすぎず、限定的なものと考えべきではない。本発明の範囲は、上記の説明ではなく、首記の特許請求の範囲によって判断すべきであり、特許請求の範囲内に入る全ての変形および同等物はその中に含まれるものとする。

#### 【図面の簡単な説明】

【図 1A】例示的な電極—膜—電極の構造を示す図である。

【図 1B】例示的な電極—膜—電極の構造を示す図である。

【図 2】本発明の一実施形態による電極—膜—電極の構造の例示的な室温積層を示す図である。

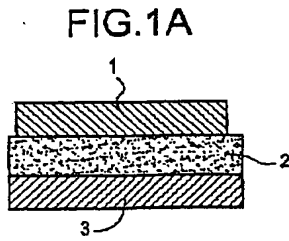
【図 3A】例示的な電極—膜—電極—膜—電極の構造を示す図である。

【図 3B】例示的な電極—膜—電極—膜—電極の構造を示す図である。

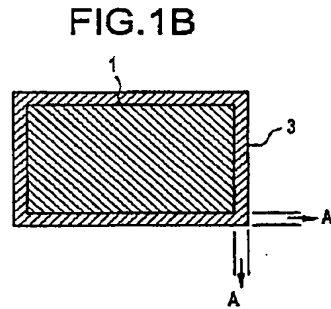
#### 【符号の説明】

- 1 正電極
- 2 膜
- 3 負電極
- 10 カレンダー

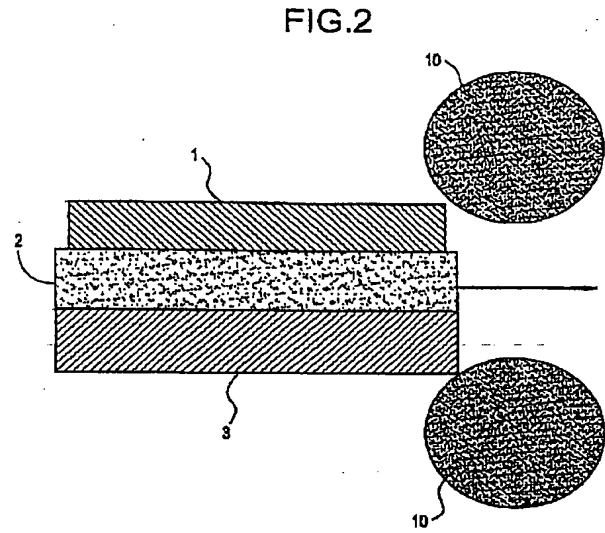
【図1A】



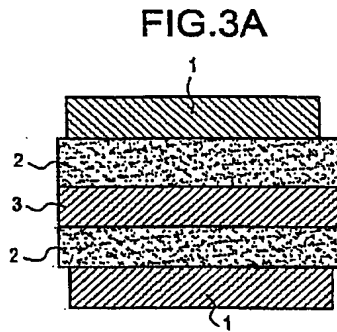
【図1B】



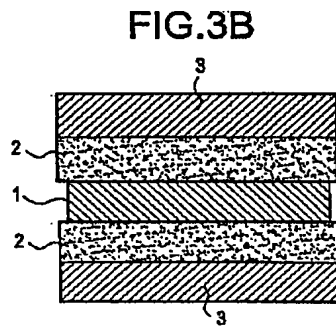
【図2】



【図3A】



【図3B】





## 【外国語明細書】

## 1. Title of Invention

## ROOM TEMPERATURE LAMINATION OF LI-ION POLYMER ELECTRODES

## 2. Claims

1. A method of manufacturing an electrolytic cell comprising the steps of:  
placing a porous membrane between a first electrode and second electrode;  
compressing the membrane between the electrodes thereby dry bonding the membrane to the electrodes.
2. The method of claim 1 wherein said step of compressing further comprises calendaring said membrane and first electrode with said second electrode.
3. The method of claim 1, wherein the first electrode has a porosity substantially between 25-40% and said second electrode as a porosity substantially between 25 to 40%.
4. The method of claim 1, wherein said step of compressing further comprises compressing said membrane at least 20%.
5. The method of claim 1, wherein said membrane initially has a porosity of at least 50%.
6. The method of claim 5, wherein said membrane is formed of a polyvinylidene difluoride homopolymer.
7. The method of claim 1, wherein said dry bond has an adhesion force greater than 10 N/cm<sup>2</sup>.

8. The method of claim 1 further comprising the steps of :
- mixing a polyvinylidene difluoride homopolymer and solvent to form a solution;
  - coating said solution on said first electrode;
  - coating said solution on said second electrode;
  - immersing said first and second coated electrodes in a liquid filled bath thereby creating a porous membrane on said first and second electrodes;
  - drying the first and second coated electrodes;
  - placing the first electrode opposite said second electrode with the respective membranes positioned substantially between said first and second electrodes;
  - compressing the membranes between the first and second electrodes thereby dry bonding said first and second electrodes together.
9. The method of claim 8 wherein said step of compressing further comprises compressing said membrane at least 25%.
10. The method of claim 8, wherein said step of creating said porous membranes on said first and second electrodes further comprises creating said membranes having a porosity of at least 60%.
11. The method of claim 10, wherein said step of creating said porous membranes on said first and second electrodes further comprises creating said membrane on said first electrode having a thickness of 50 $\mu$ m to 120 $\mu$ m and said membrane on said second electrode

having a thickness of 25 $\mu$ m to 100 $\mu$ m.

12. An electrolytic cell made according to the method of claim 11.
13. A method of manufacturing an electrolytic cell comprising the steps of:  
providing a first electrode coated with a porous membrane;  
placing said membrane and first electrode opposite a second electrode with said membrane positioned substantially between said first and second electrodes; and  
compressing the membrane between the electrodes thereby dry bonding the membrane with said second electrode.
14. The method of claim 13, further comprising the steps of:  
mixing a polyvinylidene difluoride homopolymer and solvent to form a solution;  
coating said solution on said first electrode;  
immersing said first electrode in a liquid filled bath thereby creating said porous membrane on said first electrode; and  
drying said membrane and first electrode before compressing said membrane and first electrode with said second electrode.
15. The method of claim 13, wherein in said first electrode is a negative electrode and said second electrode is a positive electrode.
16. The method of claim 13, wherein said first electrode is a positive electrode and said

second electrode is a negative electrode.

17. The method of claim 13, wherein the first electrode has a porosity of at least 30% and said second electrode as a porosity of at least 25%.

18. The method of claim 13, wherein said step of compressing further comprises calendering said membrane and first electrode with said second electrode.

19. The method of claim 15, wherein said step of compressing further comprises compressing said membrane at least 20%.

20. The method of claim 13, wherein said step of creating a membrane further comprises creating a membrane initially having a porosity substantially of at least 50%.

21. The method of claim 20, wherein said step of creating a membrane further comprises creating a membrane having a thickness at least 50 $\mu$ m.

22. The method of claim 13, wherein said dry bond has an adhesion force greater than 10 N/cm<sup>2</sup>.

23. An electrolytic cell made according to the method of claim 13.

24. A method of manufacturing an electrolytic cell comprising the steps of:

placing a first porous membrane between a first electrode and second electrode;

placing a second porous membrane between said second electrode and a third electrode;

compressing said first membrane and said second membrane between said first and second electrodes and said second and third electrodes, respectively, thereby dry bonding said first membrane and said second membrane to said first and second electrodes and said second and third electrodes, respectively.

25. The method of claim 24, wherein said first and third electrodes are positive and said second electrode is negative.

26. The method of claim 24, wherein said first and third electrodes are negative and said second electrode is positive.

27. The method of claim 24, wherein said dry bond has an adhesion force greater than 10 N/cm<sup>2</sup>.

28. An electrolytic cell made according to the method of claim 24.

29. A method of manufacturing a lithium secondary cell including a microporous polyvinylidene difluoride homopolymer (PVdF) membrane comprising the steps of:

providing a lithium based electrode;

placing the PVdF membrane on said electrode; and

compressing said electrode and membrane, wherein said electrode and the PVdF membrane are dry bonded with an adhesion force of at least  $10 \text{ N/cm}^2$ .

30. The method of claim 29, wherein the step of compression compresses said membrane to at least 70 percent of its original thickness.

31. A Lithium ion cell manufactured according to the method of claim 29.

32. A method of manufacturing a lithium secondary cell including a microporous polyvinylidene difluoride homopolymer (PVdF) membrane comprising the steps of:

providing a lithium based electrode;

coating said electrode with a first PVdF membrane;

placing a second PVdF membrane on first PVdF membrane; and

compressing said electrode coated PVdF membrane and said second PVdF membrane, wherein said electrode coated PVdF membrane and said second PVdF membrane are dry bonded with an adhesion force of at least  $10 \text{ N/cm}^2$ .

33. The method according to claim 32, wherein said step of compressing compresses said first and second membranes to at least 70 percent of their original thickness.

34. A Lithium ion cell manufactured according to the method of claim 32.

### 3. Detailed Description of Invention

The present invention relates generally to electrolytic cells comprising a polymeric separator positioned between an anode and a cathode and in particular to room temperature lamination of Lithium-ion polymer electrodes for electrolytic cells.

Various processes are used in the manufacture of electrolytic cells such as those for use in Li-ion batteries. Li-ion batteries are commonly used for rechargeable battery applications and can be found in many portable electronic devices, such as cellular phones. In conventional lithium ion cells with free liquid electrolyte, the electrode/separator/electrode structure is held together by winding the structure into a roll.

In other lithium ion polymer cells the electrode/separator/electrodes structure is conventionally accomplished by either chemical or hydrogen bonding between the polymer constituents in the electrodes and the separator, respectively. Such cells are also constructed by lamination of electrode and electrolyte film cell elements. The separator or membrane is positioned between the positive and negative electrodes. The anode, membrane, and cathode are then laminated together. However, a suitable bond should be provided between the anode, membrane, and cathode or the electrode will rapidly break down under use, reducing the life and performance of the battery.

As described above, different bonding techniques are used to create battery cells and electrodes. According to one such method, an adhesive is used with the membrane to bind the elements of the electrode together. However, this method has many parameters that must be monitored and are difficult to control in an industrial manufacturing setting making such a process costly to implement. In addition, the adhesive can dissolve and break

down the membrane causing it to collapse. This results in a higher cell impedance, bad power performance, and lower capacity of the cell.

Another process that is used is described in U.S. Patent No. 5,720,780, for example. According to this method a binder of a suitable polymer, such as a polyvinylidene difluoride (PVdF) homopolymer is used with a filler material such as silica or aluminum. An appropriate plasticizer is mixed into the binder and filler materials, and the resulting structure is hot pressed into a freestanding sheet. This process requires an extra step of heating, in addition to the later process step of removing the plasticizer, that necessitates careful control of a number of manufacturing process variables and conditions.

Another method for manufacturing a battery cell having a solid electrolyte laminated onto a porous electrode structure is described in U.S. Patent No. 5,700,300. The patent describes a three step process for electrolyte deposition. A surplus of electrolyte pre-wet material, having a relatively low viscosity, is layered onto a dry, porous electrode. Surplus pre-wet material is mechanically removed from the surface of the electrode. The pre-wet solution is allowed to absorb into the porous electrode, and the surface is coated with a high-viscosity electrolyte precursor. Curing or further processing is accomplished with standard methods. The battery can be formed by laminating a current collector/anode sheet to the surface of the electrolyte of the current collector/cathode/electrolyte laminate.

U.S. Patent No. 5,593,462 describes a process of extruding a cathode on a metalized support film, followed by extruding the electrolyte on an assembly. A lithium anode is then extruded on a support film and the two complexes are then calendered together.



Although these two methods do not require the step of heating or the use of an adhesive, they do utilize a wet electrolyte. As a result, both methods have a weak bonding, such as hydrogen bonding, to hold the laminated structure together, instead of creating a physical bond. Because a weak bond is used, cracking or peeling of the laminate structure may occur during use thereby reducing the life and operating efficiency of a battery made from these methods. In addition, the manufacturing conditions for these methods, such as room humidity, must be carefully monitored and controlled adding to the cost of production using this method.

### SUMMARY

It is therefore an object of the invention to reduce the complexity associated with processes for manufacturing electrolytic cells.

It is another object of the invention to provide a laminated structure that does not require added adhesives while providing a strong physical bond between the laminated layers.

According to an exemplary embodiment of the present invention the foregoing and other objects are accomplished through implementation of a room temperature laminating process.

According to a first embodiment of the method, a polyvinylidene difluoride homopolymer and solvent are mixed together to form a solution. The solution is coated on an electrode. The electrode is immersed in a bath thereby creating a porous membrane on the electrode. The membrane coated electrode is then dried. After drying, the membrane coated electrode is placed opposite another electrode with the membrane positioned

substantially between said first and second electrodes. The membrane is compressed between the electrodes, dry bonding the membrane with the other electrode thereby forming a good physical bond.

According to another embodiment of the invention a polyvinylidene difluoride homopolymer is mixed with solvent to form a solution. The solution is coated on a first and a second electrode. The first and second coated electrodes are immersed in a bath thereby creating a porous membrane on the electrodes. The electrodes are dried. The first electrode is placed opposite the second electrode with their respective membranes positioned substantially between the electrodes. The membranes are then compressed between the first and second electrodes thereby dry bonding said first and second electrodes together.

According to yet another embodiment of the invention a polyvinylidene difluoride homopolymer and solvent are mixed together to form a solution. A membrane is formed by immersing said solution in a bath. The membrane is dried and then placed substantially between two electrodes. The membrane is then compressed between the electrodes thereby dry bonding the membrane with said two electrodes.

The foregoing and other features, objects, and advantages of the invention will be better understood by reading the following description in conjunction with the drawings.

**DETAILED DESCRIPTION:**

The various features of the invention will now be described with respect to the figures, in which like parts are identified with the same reference characters.

An electrochemical cell or battery of the present invention has a negative electrode and a positive electrode. A membrane is formed between the two electrodes. An ion-conducting electrolyte provides ion transfer from one electrode to the other. For example, according to one embodiment for a Lithium ion battery, lithium ions from a source electrode move between the cell electrodes thereby charging and discharging the battery. According to one preferred embodiment of the invention, the negative electrode is approximately 120 $\mu$ m thick supported with a 18 $\mu$ m thick copper foil; the positive electrode is approximately 90 $\mu$ m thick supported with a 20 $\mu$ m thick aluminum foil.

According to an embodiment of the present invention, a polyvinylidene difluoride (PVdF) homopolymer is used to form a porous membrane. PVdF is a solid at room temperature; however, by blending the PVdF with a solvent, such as Acetone, a liquid solution is formed. One skilled in the art will appreciate that other solvents may also be used, such as, Tetrahydrofuran, Methyl Ethyl Keton, Dimethyl Formamide, Dimethyl Acetamide, Tetramethyl Urea, Dimethyl Sulfoxide, Triethyl Phosphate, Trimethyl Phosphate, N-Methyl Pyrrolidine.

According to an embodiment of the invention, the porous membrane can be formed as follows. 19wt% PVdF homopolymer, for example, Kynar 301F, (available from Elf Atochem, King of Prussia, Pennsylvania), is dissolved in 81 wt% Acetone, HPLC grade, (available from Aldrich, Milwaukee, Wisconsin) in a hermetically sealed container. The solution is then stirred at 60°C. One skilled in the art will appreciate that a mixture of different solvents can also be used to dissolve the PVdF in order to control the morphology of the final product.

According to an exemplary embodiment of the invention, the PVdF/acetone solution is coated on a composite graphite negative electrode. The negative electrode should have a porosity substantially between 25 to 40 percent. The PVdF/acetone solution may be applied by any of a number of known methods. According to one embodiment, a knife coater is used to coat the electrode. Alternatively, it may be extruded to coat the electrode at a substantially uniform thickness through use of a doctor blade, Meyer rod, or slot die, for example.

The negative electrode, coated with the PVdF/acetone solution, is then placed in an immersion bath. According to one preferred embodiment, the bath contains denatured ethanol (available from Ashland Chemicals, Charlotte, North Carolina). Other immersion liquids that can be used in this process, though not exhaustive, are Hexane, Pentane, Benzene, Toluene, Methanol, Ethanol, Carbon Tetrachloride, o-Dichlorobenzene, Trichloroethylene, and water. In addition, different mixtures of these liquids and the solvents listed above may be used if the overall composition of the bath is a non-solvent. In this way, the amount of non-solvent in the bath can be used to regulate the time required to form the membrane, which will also control the final morphology of the membrane. In this

embodiment, the coated electrode is immersed for at least 30 seconds in the ethanol bath. According to this process, once the coated electrode is placed in the bath, the ethanol replaces the acetone in the PVdF solution. By removing the acetone there is nothing to keep the PVdF in a liquid state and a membrane with a highly porous structure of PVdF is precipitated out of the solution. As a result the electrode is left coated with a porous membrane of PVdF.

The negative electrode and PVdF membrane are then removed from the bath and allowed to dry. Drying can be accomplished using air or heat, or combination thereof. According to one preferred embodiment the electrode can be dried in a convection oven with ambient temperature set to 100°C. The porosity of the dried membrane should be between 60 and 80 percent with a thickness of 40 $\mu$ m to 110 $\mu$ m. According to one preferred embodiment, the thickness should be between 60 $\mu$ m to 90 $\mu$ m.

The dried negative electrode-membrane structure is then cut into a rectangle approximately 83mm one and 43mm wide. A composite positive electrode based on  $\text{LiCoO}_2$ ,  $\text{LiNiO}_2$ ,  $\text{LiMn}_2\text{O}_4$ , alloys thereof, or other Lithium intercalating compounds, having a porosity substantially between 25-40 percent is cut into rectangles 81mm long by 41mm wide. One skilled in the art will appreciate that other dimensions could be used as determined by the specific application, or both the electrodes and the membrane can be laminated together as continuous webs.

Turning to Figs. 1A and B, the positive electrode plate 1 is then placed on top of the negative electrode 3-membrane 2 structure with the membrane 2 positioned between the electrodes 1 and 3. A 1mm clearance "A" between the edge of the positive electrode 1 and the negative electrode 3 is provided all the way around the perimeter of the rectangular

structure as shown in Fig. 1B. One skilled in the art will appreciate, that other clearances can be used depending on the requirements of the actual manufacturing process.

As shown in FIG. 2, the stacked positive electrode (1)-membrane (2)-negative electrode (3) is then placed in a laboratory calender 10, such as a Accunip manufactured by KRHNRolls, Inc, Orange, Massachusetts, and calendered together. According to this exemplary embodiment, the gap of the calender 10 should be adjusted such that the membrane is compressed to substantially 15 to 75 percent of its original thickness; according to one preferred embodiment 25 to 70 percent, thereby causing a dry bond to be formed between the porous membrane 3 and the positive electrode 1. According to this embodiment a dry bond with an adhesion force of 20 to 38 N/cm<sup>2</sup> may be obtained with best adhesion values reached with a compression ratio of 70 percent.

A dry bond is a physical bonding of the membrane structure with the electrode. The porosity of the membrane and the porosity of the electrode allow for cross-penetration of the membrane and electrode, which combined with the deformation caused by the calendering, physically cross-links the two structures. As a result, adhesion forces of 12-40 N/cm<sup>2</sup> may be obtained. In addition, the bonding is dry without out the need of any chemical reaction or atomic bonding. As a result, a strong physical bond is formed that resists the cracking and peeling associated with other prior lamination techniques. Furthermore, because the bonding is dry, there is no need for careful monitoring and control of room conditions during the lamination process, and no plasticizer or volatile compounds have to be removed.

According to another embodiment of the invention, the positive electrode may be coated as described above instead of the negative electrode. The positive electrode-membrane-electrode structure can then be calendered as described above.

According to an alternative embodiment of the invention, the membrane is coated on both the positive electrode and negative electrode, in a manner similar to that described above for the negative electrode. In this embodiment, the membrane has a porosity between 60 and 80 percent with a thickness of 25 $\mu$ m to 75 $\mu$ m. The positive electrode-membrane is then cut into rectangles 81mm long by 41mm wide and the negative membrane-electrode is cut into rectangles 83mm long by 43mm wide. One skilled in the art will appreciate that other dimensions could be used as determined by the specific application.

The positive membrane coated electrode is then placed on the negative membrane coated electrode with the membrane coatings facing each other. The positive electrode-membrane-membrane-negative electrode structure is then calendered. The gap of the calender according to this embodiment should be adjusted so that the membranes are compressed to 25-70 percent of their original thickness and according to one preferred embodiment to 35 to 50 percent. This causes the membranes to physically bond together forming and form a dry bond with an adhesion force ranging from 12-33 N/cm<sup>2</sup>. In this embodiment, the best values can be reached with a compression ratio of approx. 40 percent.

According to yet another alternative embodiment of the invention, a free standing membrane may be formed separately using the immersion bath technique previously described. According to this method the membrane can be formed on a non-woven web, polypropylene sheet, or Mylar film, for example. The porosity of the membrane

should be between 60 to 80 percent. A positive electrode having a porosity between 25-40 is cut into a rectangle 81mm long by 41mm wide and a negative electrode having a porosity between 30-40% is cut into a rectangle 83mm long by 43mm wide. The membrane is also cut into an 83mm long by 43mm wide rectangle. The membrane is placed on the negative electrode and the positive electrode is placed on the membrane. The positive electrode-membrane-negative electrode structure is then calendered together. The gap of the calender according to this embodiment should be adjusted so that the membrane would be compressed to 15-70 percent of their original thickness and according to one preferred embodiment to 40-70 percent. This causes the membrane to physically bond to the positive and negative electrodes.

In another alternative embodiment of the invention, according to the processes described above, other cells structures can be achieved as shown in FIGS. 3A and 3B. For example, a positive electrode /membrane /negative electrode /membrane /positive electrode (FIG. 3A), or a negative electrode /membrane /positive electrode /membrane /negative electrode structure, can be achieved (FIG. 3B). According to this embodiment two negative or two positive electrodes are coated with a porous membrane. A positive or negative electrode is then placed substantially between the coated negative or positive electrodes, respectively, with the membranes facing the placed positive or negative electrode. The positive electrode /membrane /negative electrode /membrane /positive electrode or the negative electrode /membrane /positive electrode /membrane /negative electrode are then calendered together as described above.

Alternatively, the positive electrode, membrane, negative electrode, membrane, and positive electrode or a negative electrode, membrane, positive electrode,



membrane, and negative electrode may be individually stacked in the corresponding structure and then calendered together as described above. Similarly, according to this another embodiment two negative or two positive electrodes are coated with a porous membrane. A positive or negative electrode are also coated and then placed substantially between the coated negative or positive electrodes, respectively, with the membranes of the electrodes facing each other. The structure may then be calendered together. Also, a membrane can be coated on both sides of a negative electrode and placed substantially between two positive electrodes. The structure may then be calendered together. In addition, a membrane can be coated on both sides of a positive electrode and placed substantially between two negative electrodes. The resulting structure may then be calendered together.

One skilled in the art will appreciate that although the processes for room temperature lamination above have been described by way of calendering the electrode membrane structure, other lamination techniques could also be used that compress the membrane according to the embodiments previously described. For example, two sheets of electrodes with a membrane therebetween can be placed in a static press and then pressed together.

According to the various embodiments of the present invention, a dry lamination can be obtained at room temperature without the need for heating, adhesives, or carefully regulated room conditions as required in prior techniques. This results in a quicker and more cost effective method for creating cells. In addition, a physical bond between the membrane and electrode is obtained thereby resisting cracking or peeling and providing a longer life to any cell. In addition, cell capacity can be maintained.

Finally, it is noted that although heating is not required in order to form a good dry bond according to the above described embodiments, nothing in the various embodiments of the present invention preclude using heating in combination with the disclosed methods. For example, in the case of membrane to membrane bonding, using a high compression ratio at a high temperature can increase adhesion forces from 26 to 33 N/cm<sup>2</sup>. Additionally, curing at high temperature may also be used in conjunction with the various embodiments of the invention to provide better adhesion forces in some cases.

The present invention has been described by way of example, and modifications and variations of the exemplary embodiments will suggest themselves to skilled artisans in this field without departing from the spirit of the invention. The preferred embodiments are merely illustrative and should not be considered restrictive in any way. The scope of the invention is to be measured by the appended claims, rather than the preceding description, and all variations and equivalents which fall within the range of the claims are intended to be embraced therein.

#### 4. Brief Description of Drawings

FIGS. 1A and 1B show an exemplary electrode-membrane-electrode structure.

FIG. 2 shows an exemplary room temperature lamination of electrode-membrane-electrode structure according one embodiment of the invention.

FIGS. 3A and 3B show an exemplary electrode-membrane-electrode-membrane-electrode structure.

Fig. 1A

FIG.1A

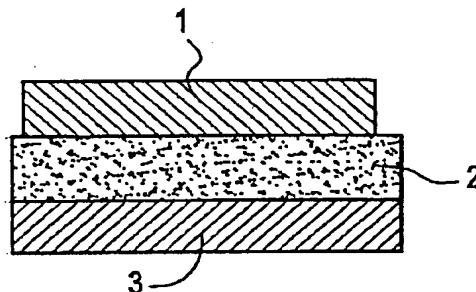


Fig. 1B

FIG.1B

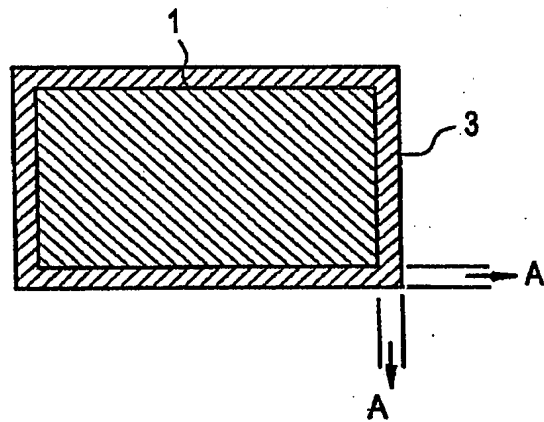


Fig. 2

FIG.2

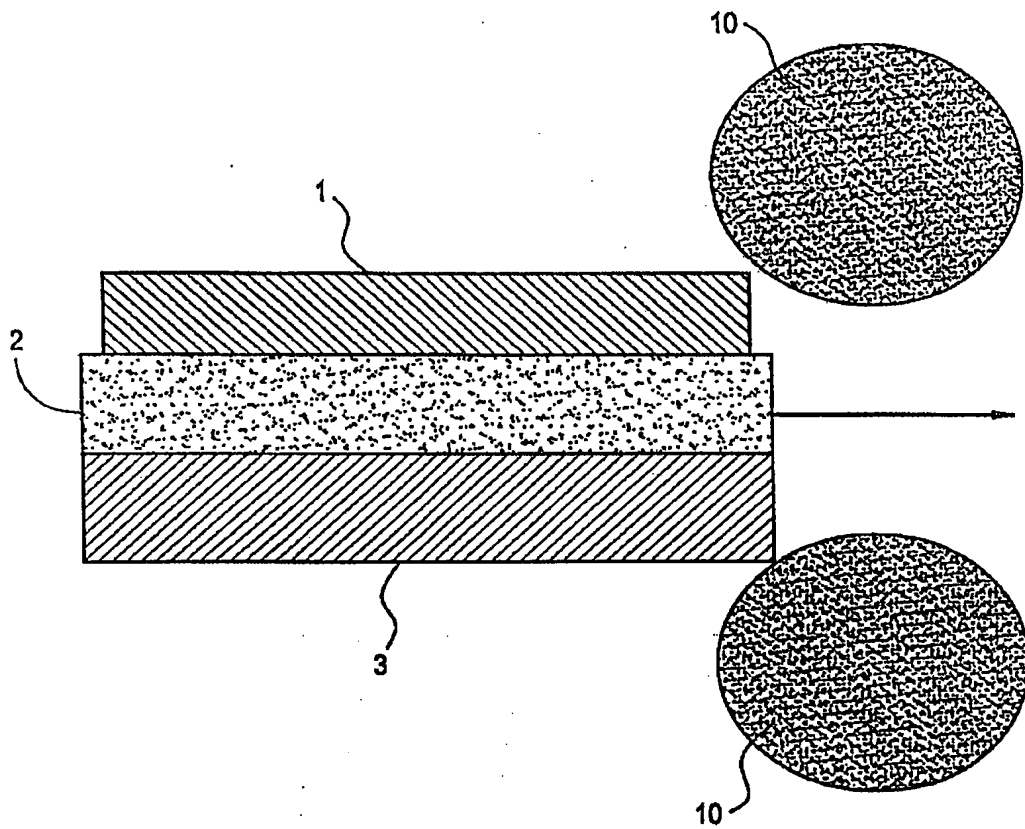


Fig. 3A

FIG.3A

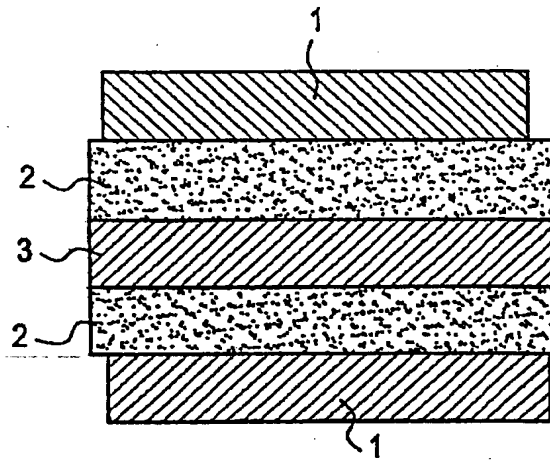
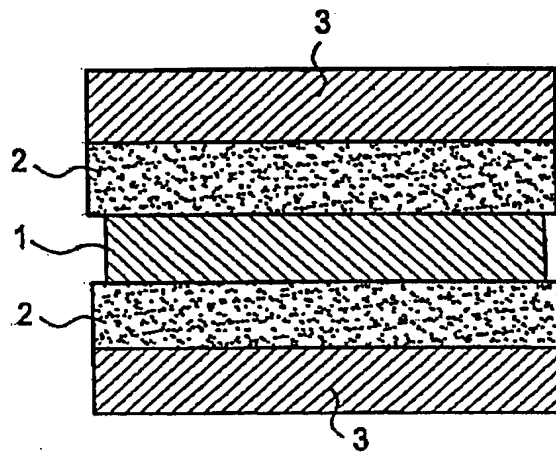


Fig. 3B

FIG.3B



## 1. Abstract

According to an exemplary embodiment a polyvinylidene difluoride homopolymer and solvent, such as acetone, are mixed together to form a solution. The solution is coated on a porous electrode. The coated electrode is immersed in a bath, such as denatured Ethanol, thereby creating a porous membrane on the electrode. The membrane coated electrode is then dried. After drying membrane coated electrode is placed opposite another porous electrode with the membrane positioned substantially between the first and second electrodes. The membrane is compressed between the electrodes dry bonding the membrane with the other electrode thereby forming a good physical bound. Alternatively the membrane may be formed on both electrodes and the membranes are then compressed between the electrodes thereby dry bonding the first and second electrodes together. In yet another embodiment the membrane may be formed separately then compressed between the electrodes thereby dry bonding the membrane with the two electrodes.

## 2. Representative Drawing

Fig. 1A